

明細書

希土類磁石

技術分野

[0001] 本発明は、希土類元素を含む磁石素体と、この磁石素体に設けられた保護膜とを有する希土類磁石に関する。

背景技術

[0002] 希土類磁石としては、例えば、 $\text{Sm}-\text{Co}_5$ 系、 $\text{Sm}_2-\text{Co}_{17}$ 系、 $\text{Sm}-\text{Fe}-\text{N}$ 系、あるいはR-Fe-B系(Rは希土類元素を表す)が知られており、高性能な永久磁石として用いられている。このうちR-Fe-B系は、希土類元素としてサマリウム(Sm)よりも豊富に存在し価格が比較的安いネオジム(Nd)を主として用いており、鉄(Fe)も安価であることに加えて、 $\text{Sm}-\text{Co}$ 系などと同等以上の磁気性能を有することから、特に注目されている。

[0003] ところが、このR-Fe-B系希土類磁石は、主成分として酸化され易い希土類元素と鉄とを含有するために、耐食性が比較的低く、性能の劣化およびばらつきなどが課題となっている。

[0004] このような希土類磁石の耐食性の低さを改善することを目的として、耐酸化性の金属などよりなる保護膜を表面に形成することが提案されている。例えば、特許文献1にはニッケル(Ni)のめっき層を2層積層したものが記載されており、特許文献2にはニッケルのめっき層の上にニッケル-硫黄(S)合金のめっき層を積層したものが記載されている。

特許文献1:特許第2599753号公報

特許文献2:特開平7-106109号公報

発明の開示

[0005] しかしながら、これらの保護膜により希土類磁石の耐食性は確かに向上するのであるが、塩化物あるいは亜硫酸ガスなどの厳しい雰囲気環境下ではわずかなピンホールが存在しても腐食してしまうので、更なる改善が求められていた。

[0006] 本発明はかかる問題点に鑑みてなされたもので、その目的は、優れた耐食性を有

する希土類磁石を提供することにある。

[0007] 本発明による希土類磁石は、希土類元素を含む磁石素体と、この磁石素体に設けられた保護膜とを備えたものであって、保護膜は、多結晶状の第1保護膜と、多結晶状であり第1保護膜よりも大きな平均結晶粒径を有する第2保護膜と、多結晶状であり第2保護膜よりも小さな平均結晶粒径を有する第3保護膜とを、磁石素体の側からこの順に有するものである。

[0008] なお、第1保護膜の平均結晶粒径は0.5 μm以下であることが好ましく、第2保護膜は柱状結晶状であることが好ましい。上記した第2保護膜の「平均結晶粒径」とは、その第2保護膜が柱状結晶状である場合における長径方向の平均粒径である。第1保護膜、第2保護膜および第3保護膜はニッケルを含む金属によりそれぞれ構成されることが好ましい。第1保護膜および第3保護膜の平均結晶粒径は、第2保護膜の平均結晶粒径よりも小さいことが好ましい。

[0009] 本発明による希土類磁石によれば、平均結晶粒径が小さい第1保護膜を磁石素体と第2保護膜との間に設けるようにしたので、保護膜の緻密性を向上させることができ、ピンホールの生成を抑制することができる。よって、耐食性を向上させることができる。

図面の簡単な説明

[0010] [図1]本発明の一実施の形態に係る希土類磁石の構成を表す断面図である。

[図2]図1に示した希土類磁石の断面構造を表すSIM写真である。

[図3]図2に示したSIM写真における第2保護膜を示すための説明図である。

[図4]実施例1の希土類磁石の断面構造を表すSIM写真である。

発明を実施するための最良の形態

[0011] 以下、本発明の実施の形態について詳細に説明する。

[0012] 図1は本発明の一実施の形態に係る希土類磁石の構成を表すものである。この希土類磁石は、希土類元素を含む磁石素体10と、磁石素体10に設けられた保護膜20とを有している。

[0013] 磁石素体10は、遷移金属元素と希土類元素とを含む永久磁石により構成されている。希土類元素というのは、長周期型周期表の3族に属するイットリウム(Y)およびランタノイドのランタン、セリウム(Ce)、プラセオジム(Pr)、ネオジム、プロメチウム(Pm)

, サマリウム, ユウロピウム(Eu), ガドリニウム(Gd), テルビウム(Tb), ジスプロシウム(Dy), ホルミウム(Ho), エルビウム(Er), ツリウム(Tm), イッテルビウム(Yb), ルテチウム(Lu)の16元素の総称である。

- [0014] 磁石素体10を構成する永久磁石としては、例えば、1種以上の希土類元素と、鉄と、ホウ素とを含有するものが挙げられる。この磁石素体10は、実質的に正方晶系の結晶構造の主相と、希土類リッチ相と、ホウ素リッチ相とを有している。主相の粒径は100 μ m以下であることが好ましい。希土類リッチ相およびホウ素リッチ相は非磁性相であり、主に主相の粒界に存在している。非磁性相は、通常、0.5体積%～50体積%含まれている。
- [0015] 希土類元素としては、例えば、ネオジム、ジスプロシウム、プラセオジム、およびテルビウムのうち少なくとも1種を含むことが好ましい。
- [0016] 希土類元素の含有量は8原子%～40原子%であることが好ましい。8原子%未満では、結晶構造が α -鉄と同一の立方晶組織となるので、高い保磁力(iHc)を得ることができず、40原子%を超えると、希土類リッチな非磁性相が多くなり、残留磁束密度(Br)が低下してしまうからである。
- [0017] 鉄の含有量は42原子%～90原子%であることが好ましい。鉄が42原子%未満であると残留磁束密度が低下してしまい、90原子%を超えると保磁力が低下してしまうからである。
- [0018] ホウ素の含有量は2原子%～28原子%であることが好ましい。ホウ素が2原子%未満であると菱面体組織となるので保磁力が不十分となり、28原子%を超えるとホウ素リッチな非磁性相が多くなるので残留磁束密度が低下してしまうからである。
- [0019] なお、鉄の一部をコバルトで置換するようにしてもよい。磁気特性を損なうことなく温度特性を改善することができるからである。この場合、コバルトの置換量は、 $Fe_{1-x}Co_x$ で表すと原子比でxが0.5以下の範囲内であることが好ましい。これよりも置換量が多いと磁気特性が劣化してしまうからである。
- [0020] また、ホウ素の一部を炭素(C), リン(P), 硫黄、および銅のうちの少なくとも1種で置換するようにしてもよい。生産性の向上および低コスト化を図ることができるからである。この場合、これら炭素、リン、硫黄および銅の含有量は、全体の4原子%以下で

あることが好ましい。これよりも多いと磁気特性が劣化してしまうからである。

- [0021] 更に、保磁力の向上、生産性の向上、および低コスト化のために、アルミニウム(Al), チタン(Ti), バナジウム(V), クロム(Cr), マンガン(Mn), ビスマス(Bi), ニオブ(Nb), タンタル(Ta), モリブデン(Mo), タングステン(W), アンチモン(Sb), ゲルマニウム(Ge), スズ(Sn), ジルコニウム(Zr), ニッケル, ケイ素(Si), ガリウム(Ga), 銅あるいはハフニウム(Hf)等の1種以上を添加してもよい。この場合、添加量は総計で全体の10原子%以下とすることが好ましい。これよりも多いと磁気特性の劣化を招いてしまうからである。
- [0022] 加えて、不可避的不純物として、酸素(O), 窒素(N), 炭素あるいはカルシウム(Ca)等が全体の3原子%以下の範囲内で含有されていてもよい。
- [0023] 磁石素体10を構成する永久磁石としては、また例えば、1種以上の希土類元素と、コバルトとを含有するもの、あるいは1種以上の希土類元素と、鉄と、窒素とを含有するものも挙げられる。具体的には、例えば、Sm-Co₅系あるいはSm₂-Co₁₇系(数字は原子比)などのサマリウムとコバルトとを含むものや、または、Nd-Fe-B系などのネオジムと鉄とホウ素とを含むものが挙げられる。
- [0024] 保護膜20は、第1保護膜21と第2保護膜22と第3保護膜23とを磁石素体10の側からこの順に積層して有している。これら第1保護膜21, 第2保護膜22および第3保護膜23はそれぞれ多結晶状であり、例えば金属のめっき膜により構成されている。なお、この金属というのは、単体のみでなく、合金も含んでいる。
- [0025] これらの平均結晶粒径は、第2保護膜22よりも第1保護膜21および第3保護膜23の方が小さくなっている。第1保護膜21を微結晶化することにより、保護膜20と磁石素体10との界面の緻密性を向上させることができ、ピンホールの数を減少させることができるからである。また、第3保護膜23を微結晶化することにより、保護膜20の表面も緻密化することができ、ピンホールの数をより減少させることができるからである。第1保護膜21の平均結晶粒径は0.5 μm以下であることが好ましく、第3保護膜23の平均結晶粒径も同様に0.5 μm以下であることが好ましい。
- [0026] 一方、第2保護膜22は例えば柱状結晶状であることが好ましい。高い耐食性を得ることができるのである。なおこの柱状結晶状というのは、一方向の粒径がそれに対し

て垂直な方向の粒径よりも長い結晶がある程度の傾向を持って配列している状態と意味し、必ずしも同一方向に配列している必要はない。逆に、図2に示したように、放射状に柱状結晶が成長している方が好ましい。図2は集束イオンビーム(FIB:Focused Ion Beam)を用いたSIM(Scanning Ion Microscopy;走査イオン顕微鏡)像であり、図3に網かけで示した領域に対応する部分が第2保護膜22である。このような構造の方が結晶粒界が比較的複雑に入り組むので、外部からの浸食物質が粒界において拡散することを抑制することができるからである。第2保護膜22における柱状結晶の大きさは、長径方向の平均粒径が $2\mu\text{m}$ 以上、短径方向の平均粒径が $1\mu\text{m}$ 以下、更には $0.5\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。なお、このように柱状結晶状である場合には、第2保護膜22の平均結晶粒径は長径方向の平均粒径を意味する。

- [0027] この保護膜20では、隣り合う膜(第1保護膜21および第2保護膜22、あるいは第2保護膜22および第3保護膜23)が互いに異なる結晶組織(平均結晶粒径の差異に基づく結晶組織)を有しているため、隣り合う膜が互いに等しい結晶組織を有している場合よりも、保護膜20の形成工程(めっき工程)においてピンホールを打ち消しやすい傾向にある。すなわち、単純なピンホールに関しては、保護膜20を多層膜とすることによりめっき工程(めっき膜の成長過程)においてピンホールが埋められるため、その保護膜20中にピンホールが残存しにくくなる。ただし、磁石素体10のような粉末冶金の焼結合金は粒径が粗いため、その磁石素体10の粒界部分を1層のめっき膜だけでは覆いきれない(ピンホールを埋めきれない)場合がある。この点に関して、隣り合う膜が互いに異なる結晶組織を有していれば、一方の膜(下地膜上に形成される膜)が他方の膜(下地膜)とは異なる膜成長を示すため、磁石素体10の粒界部分をめっき膜で十分に覆う(ピンホールを埋める)ことができる。特に、柱状結晶状の膜(ここでは第2保護膜22)は隙間を生じさせないように電析成長するため、ピンホールを埋めることに適している。この観点による最も好ましい保護膜20の膜構造は、小さい平均結晶粒径を有する膜と柱状結晶状を有する膜とが交互に積層された積層構造である。

- [0028] 保護膜20を構成する材料としては、例えば、第1保護膜21、第2保護膜22および第3保護膜23はニッケルまたはニッケル合金が好ましい。高い耐食性を得ることがで

きるからである。なお、上記した保護膜20を構成する材料は、必ずしもニッケルまたはニッケル合金に限らず、例えば、銅、銅合金、錫または錫合金であってもよい。

- [0029] この希土類磁石は、例えば、磁石素体10を形成したのち、磁石素体10の上に、第1保護膜21、第2保護膜22および第3保護膜23を順に積層して保護膜20を形成することにより製造することができる。
- [0030] 磁石素体10は、例えば次のようにして焼結法により形成することが好ましい。まず、所望の組成の合金を鋳造し、インゴットを作製する。次いで、得られたインゴットを、スタンプミル等により粒径 $10\text{ }\mu\text{m}$ ～ $800\text{ }\mu\text{m}$ 程度に粗粉碎し、更にボールミル等により粒径 $0.5\text{ }\mu\text{m}$ ～ $5\text{ }\mu\text{m}$ 程度の粉末に微粉碎する。続いて、得られた粉末を、好ましくは磁場中において成形する。この場合、磁場強度は $10000 \times 10^3 / (4\pi)\text{ A/m}$ ($= 10\text{kOe}$)以上、成形圧力は 1Mg/cm^2 ～ 5Mg/cm^2 程度とすることが好ましい。
- [0031] その後、得られた成形体を、 1000°C ～ 1200°C で0.5時間～24時間焼結し、冷却する。焼結雰囲気は、アルゴン(Ar)ガス等の不活性ガス雰囲気または真空とすることが好ましい。更にその後、不活性ガス雰囲気中で、 500°C ～ 900°C にて1時間～5時間時効処理を行うことが好ましい。この時効処理は複数回行ってもよい。
- [0032] なお、2種以上の希土類元素を用いる場合には、原料としてミッショメタル等の混合物を用いるようにしてもよい。また、磁石素体10を焼結法以外の方法により製造するようにしてもよく、例えばバルク体磁石を製造する際のいわゆる急冷法により製造するようにしてもよい。
- [0033] また、第1保護膜21、第2保護膜22および第3保護膜23は、電気めっきにより形成することが好ましい。めっき浴は形成したいめっき膜に応じて選択する。その際、めっき浴の種類またはめっき時の電流密度を調節することにより、第1保護膜21、第2保護膜22および第3保護膜23の平均結晶粒径および結晶の形状を制御する。例えば、第1保護膜21は過電圧を加えて電流密度を 0.3A/dm^2 以上 1A/dm^2 以下とすることにより微結晶化することができ、第2保護膜22は例えば電流密度を 0.01A/dm^2 以上 0.3A/dm^2 以下とし、かつ適切な光沢剤を添加することにより柱状結晶状とすることができます、第3保護膜23は例えば電流密度を 0.01A/dm^2 以上 0.3A/dm^2 以下し、かつ適切な光沢剤を添加することにより微結晶化することができる。

- [0034] 上記しためつき用の光沢剤としては、例えば、必要に応じて半光沢添加剤または光沢添加剤を用いることが可能である。この半光沢添加剤としては、例えば、ブチンジオール、クマリン、ポロパギルアルコールまたはホルマリンなどの硫黄を含まない有機物などが挙げられる。また、光沢添加剤のうち、一次光沢剤としては、例えば、サッカリン、1, 5-ナフタリンジスルホン酸ナトリウム、1, 3, 6-ナフタレントリスルホン酸ナトリウム、パラトルエンスルホンアミドなどが挙げられ、二次光沢剤としては、例えば、クマリン、2-ブチニ-1, 4-ジオール、エチレンシアノヒドリン、プロパギルアルコール、ホルムアルデヒド、チオ尿素、キノリンまたはピリシンなどが挙げられる。
- [0035] なお、保護膜20を形成する前に、前処理を行うようにしてもよい。前処理としては、例えば、アルカリによる脱脂あるいは有機溶剤による脱脂、およびそれに続いて行われる酸処理等による活性化がある。
- [0036] この希土類磁石では、第1保護膜21、第2保護膜22および第3保護膜23が磁石素体10の側から順に積層して設けられているので、磁石素体10と保護膜20との界面および保護膜20の表面の緻密性が向上し、腐食が抑制される。
- [0037] このように本実施の形態によれば、第1保護膜21、第2保護膜22および第3保護膜23を磁石素体10の側からこの順に積層して有する保護層20を設けるようにしたので、保護膜20の緻密性を向上させることができ、ピンホールの数を減少させることができる。よって、耐食性を向上させることができる。
- [0038] 特に、第1保護膜21の平均結晶粒径を0.5 μm以下とするようにすれば、第2保護膜22を柱状結晶状とするようにすれば、より高い効果を得ることができる。
- ### 実施例
- [0039] 更に、本発明の具体的な実施例について説明する。
- [0040] (実施例1)
- 粉末冶金法によって作成したNd-Fe-Bの焼結体を、アルゴン雰囲気中で600°Cにて2時間の熱処理を施したのち、56×40×8(mm)の大きさに加工し、さらにバーレル研磨処理により面取りを行って磁石素体10を得た。次いで、この磁石素体10を、アルカリ性脱脂液で洗浄した後、硝酸溶液により表面の活性化を行い、良く水洗した。

[0041] 続いて、磁石素体10の表面に、半光沢添加剤を含むワット浴を用いて電気めっきによりニッケルめっき膜よりなる第1保護膜21および第2保護膜22を順に形成した。その際、電流密度を最初は $0.7\text{A}/\text{dm}^2$ を超えるように調整し、その後 $0.3\text{A}/\text{dm}^2$ に調整した。続いて、光沢添加剤を含むワット浴を用いて電気めっきによりニッケルめっき膜よりなる第3保護膜23を形成した。その際、電流密度を $0.3\text{A}/\text{dm}^2$ で一定となるように調整した。これにより実施例1の希土類磁石を得た。

[0042] (実施例2)

以下の手順を除き、実施例1と同様の手順を経ることにより実施例2の希土類磁石を得た。すなわち、有機硫黄化合物光沢剤(100mgL (リットル))を含むワット浴を用いて電気めっきによりニッケルー硫黄合金膜よりなる第1保護膜21を形成したのち、半光沢添加剤を含むワット浴を用いて電気めっきによりニッケルめっき膜よりなる第2保護膜22を形成した。続いて、光沢添加剤を含むワット浴を用いて電気めっきによりニッケルめっき膜よりなる第3保護膜23を形成した。その際、全て電流密度を $0.3\text{A}/\text{dm}^2$ で一定となるように調整した。

[0043] (実施例3)

以下の手順を除き、実施例1と同様の手順を経ることにより実施例3の希土類磁石を得た。すなわち、クエン酸ニッケル(250g/L)およびホウ酸(40g/L)で構成されるめっき浴を用いて電気めっきにより第1保護膜21を形成したのち、半光沢添加剤を含むワット浴を用いて電気めっきによりニッケルめっき膜よりなる第2保護膜22を形成した。続いて、光沢添加剤を含むワット浴を用いて電気めっきによりニッケルめっき膜よりなる第3保護膜23を形成した。その際、全て電流密度を $0.3\text{A}/\text{dm}^2$ で一定となるように調整した。

[0044] (実施例4)

以下の手順を除き、実施例1と同様の手順を経ることにより実施例4の希土類磁石を得た。すなわち、クエン酸ニッケルおよび次亜リン酸を主成分とするアンモニアアルカリ型の無電解ニッケルめっき浴を用いてニッケルーリン合金よりなる第1保護膜21を形成したのち、半光沢添加剤を含むワット浴を用いて電気めっきによりニッケルめっき膜よりなる第2保護膜22を形成した。続いて、光沢添加剤を含むワット浴を用い

て電気めっきによりニッケルめっき膜よりなる第3保護膜23を形成した。その際、全て電流密度を0.3A/dm²で一定となるように調整した。

[0045] (比較例1)

第1保護膜を形成しなかったことを除き、他は実施例1と同様にして希土類磁石を作製した。

[0046] (評価)

作製した実施例1～4および比較例1の希土類磁石について断面のFIBを用いたSIM像を観察した。図4に実施例1のSIM像を示す。図4に示したように、実施例1の希土類磁石は、磁石素体10の上に、微結晶状の第1保護膜21、柱状結晶状の第2保護膜22、および微結晶状の第3保護膜23が順に形成されていることが分かる。第1保護膜21の平均結晶粒径は0.5μm以下、その厚みは約2μm、第2保護膜22の長径方向の平均粒径は5μm～10μm、短径方向の平均粒径は0.7μm～1μm、その厚みは約5μm、第3保護膜23の平均結晶粒径は0.5μm以下、その厚みは約5μmであった。

[0047] 比較例1については図示しないが、磁石素体10の上に柱状結晶状の第2保護膜および微結晶状の第3保護膜が順に形成されていた。第2保護膜の長径方向の平均粒径は5μm、短径方向の平均粒径は1μm、その厚みは約5μm、第3保護膜の平均結晶粒径は0.5μm以下、その厚みは約5μmであった。

[0048] 実施例1～4および比較例1の希土類磁石について、水蒸気雰囲気、120°C、0.2×10⁶Paにおける100時間の加湿高温試験、およびJIS-C-0023による24時間の塩水噴霧試験を行い、耐食性を評価した。外観を肉眼で検査し、発錆の有無で合否を判定した。それらの結果を表1に示す。

[0049] [表1]

	平均結晶粒径			加湿高温試験	塩水噴霧試験
	第1保護膜	第2保護膜	第3保護膜		
実施例1	0.5 μm以下	長径方向5 μm 短径方向1 μm	0.5 μm以下	合格	合格
実施例2	0.5 μm以下	長径方向8 μm 短径方向0.7 μm	0.5 μm以下	合格	合格
実施例3	0.3 μm以下	長径方向10 μm 短径方向0.7 μm	0.5 μm以下	合格	合格
実施例4	0.5 μm以下	長径方向10 μm 短径方向0.7 μm	0.5 μm以下	合格	合格
比較例1	—	長径方向5 μm 短径方向1 μm	0.5 μm以下	合格	不合格

[0050] 表1に示したように、実施例1～4によれば加湿高温試験も塩水噴霧試験も共に合格であったのに対して、比較例1では塩水噴霧試験において腐食がみられた。すなわち、微結晶状の第1保護膜21を設けるようにすれば、優れた耐食性を得られることが分かった。

[0051] (実施例5)

めっき時間を調整することにより第1保護膜21の平均粒径を0.5 μm以下、その厚みを約2 μm、第2保護膜22の長径方向の平均粒径を1 μm、短径方向の平均粒径を0.7 μm、その厚みを約2 μm、第3保護膜23の平均粒径を0.5 μm以下、その厚みを約7 μmとした点を除き、実施例1と同様の手順を経ることにより実施例5の希土類磁石を得た。

[0052] (実施例6)

めっき時間を調整することにより第1保護膜21の平均粒径を0.5 μm以下、その厚みを約2 μm、第2保護膜22の長径方向の平均粒径を2 μm、短径方向の平均粒径を0.8 μm、その厚みを約3 μm、第3保護膜23の平均粒径を0.5 μm以下、その厚みを約7 μmとした点を除き、実施例1と同様の手順を経ることにより実施例6の希土類磁石を得た。

[0053] (実施例7)

めっき時間を調整することにより第1保護膜21の平均粒径を0.5μm以下、その厚みを約5μm、第2保護膜22の長径方向の平均粒径を60μm、短径方向の平均粒径を1.5μm、その厚みを約75μm、第3保護膜23の平均粒径を0.5μm以下、その厚みを約26μmとした点を除き、実施例1と同様の手順を経ることにより実施例7の希土類磁石を得た。

[0054] (評価)

実施例1, 5~7の希土類磁石について、上記した加湿高温試験および塩水噴霧試験を行い、耐食性を評価した。それらの結果を表2に示す。

[0055] [表2]

	平均結晶粒径			加湿高温試験	塩水噴霧試験
	第1保護膜	第2保護膜	第3保護膜		
実施例1	0.5μm以下	長径方向5μm 短径方向1μm	0.5μm以下	合格	合格
実施例5	0.5μm以下	長径方向1μm 短径方向0.7μm	0.5μm以下	合格	合格 (僅か変色)
実施例6	0.5μm以下	長径方向2μm 短径方向0.8μm	0.5μm以下	合格	合格
実施例7	0.5μm以下	長径方向60μm 短径方向1.5μm	0.5μm以下	合格	合格

[0056] 表2に示したように、実施例5において塩水噴霧試験で僅かな変色が確認された点を除き、実施例1, 5~7によつても、加湿高温試験も塩水噴霧試験も共に合格であつた。すなわち、やはり優れた耐食性を得られることが分かった。

[0057] 以上、実施の形態および実施例を挙げて本発明を説明したが、本発明は、上記実施の形態および実施例に限定されるものではなく、種々変形することができる。例えば、上記実施の形態および実施例では、磁石素体10と、保護膜20とを備える場合について説明したが、これら以外の他の構成要素を更に有していてもよい。例えば、磁石素体10と保護膜20との間、または保護膜20の上に他の膜を有していてもよい。

[0058] また、上記実施の形態および実施例では、保護膜20が第1保護膜21、第2保護膜22および第3保護膜23を順に有する場合について説明したが、これら以外の他の構成要素を更に有していてもよい。

産業上の利用可能性

[0059] 本発明による希土類磁石は、電気自動車用モーター、ハイブリッド自動車用モーター、ロボット用モーター、ハードディスクボイスコイル用モーター、光ピックアップ用モーター、あるいはスピンドルモーターなどに好適に用いることができる。

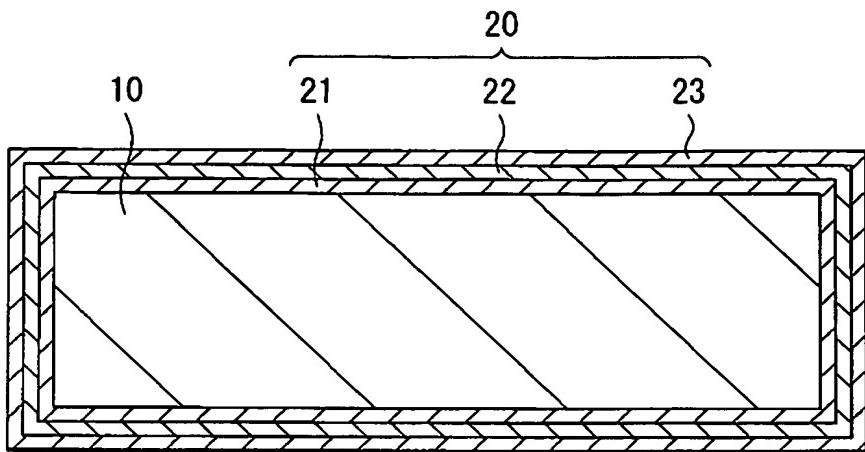
請求の範囲

- [1] 希土類元素を含む磁石素体と、この磁石素体に設けられた保護膜とを備えた希土類磁石であって、
前記保護膜は、多結晶状の第1保護膜と、多結晶状であり前記第1保護膜よりも大きな平均結晶粒径を有する第2保護膜と、多結晶状であり前記第2保護膜よりも小さな平均結晶粒径を有する第3保護膜とを、前記磁石素体の側からこの順に有することを特徴とする希土類磁石。
- [2] 前記第1保護膜の平均結晶粒径は、 $0.5 \mu m$ 以下であることを特徴とする請求の範囲第1項記載の希土類磁石。
- [3] 前記第2保護膜は柱状結晶状であることを特徴とする請求の範囲第1項記載の希土類磁石。
- [4] 前記第1保護膜、前記第2保護膜および前記第3保護膜はニッケルを含む金属によりそれぞれ構成されることを特徴とする請求の範囲第1項記載の希土類磁石。
- [5] 前記第1保護膜および前記第3保護膜の平均結晶粒径は、前記第2保護膜の平均結晶粒径よりも小さいことを特徴とする請求の範囲第1項記載の希土類磁石。

要 約 書

優れた耐食性を有する希土類磁石を提供する。希土類元素を含む磁石素体(10)と、磁石素体(10)に形成された保護膜(20)とを有する。保護膜(20)は第1保護膜(21)と第2保護膜(22)と第3保護膜(23)とを磁石素体(10)の側からこの順に積層している。これらは多結晶状であり、例えば金属のめっき膜により構成されている。これらの平均結晶粒径は、第2保護膜(22)よりも第1保護膜(21)および第3保護膜(23)の方が小さくなっている。第1保護膜(21)を微結晶化することにより、保護膜(20)と磁石素体(10)との界面の緻密性を向上させることができ、ピンホールの数を減少させることができる。

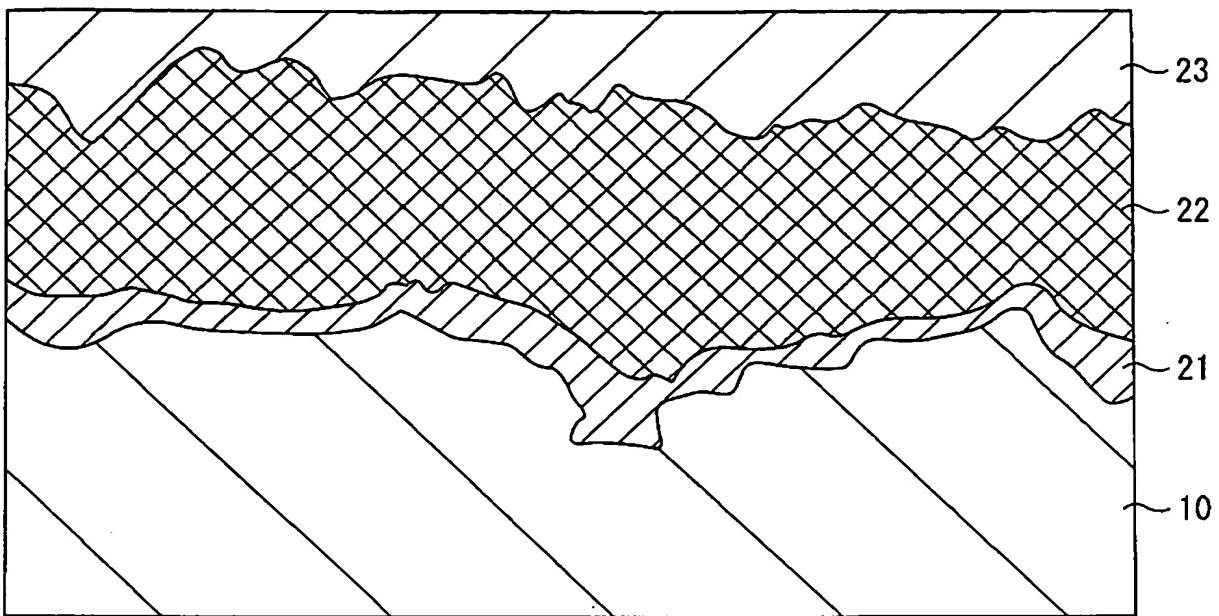
[図1]



[図2]



[図3]



[図4]



特許協力条約に基づく国際出願願書

紙面による写し(注意 電子データが原本となります)

0	受理官庁記入欄 国際出願番号	
0-1		
0-2	国際出願日	
0-3	(受付印)	
0-4	様式 PCT/RO/101 この特許協力条約に基づく国際出願願書 は、 右記によって作成された。	
0-4-1		JPO-PAS 0324
0-5	申立て 出願人は、この国際出願が特許協力条約 に従って処理されることを請求する。	
0-6	出願人によって指定された受理官庁	日本国特許庁 (RO/JP)
0-7	出願人又は代理人の審査記号	99P06957
I	発明の名称	希土類磁石
II	出願人 この欄に記載した者は 右の指定国についての出願人である。	出願人である (applicant only) 米国を除く全ての指定国 (all designated States except US)
II-1		
II-2		
II-4ja	名称	TDK株式会社
II-4en	Name:	TDK CORPORATION
II-5ja	あて名	1038272
II-5en	Address:	日本国 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 13-1, Nihonbashi 1-chome, Chuo-ku Tokyo 1038272 Japan
II-6	国籍(国名)	日本国 JP
II-7	住所(国名)	日本国 JP
II-8	電話番号	047-378-9093
II-9	ファクシミリ番号	047-378-9321

特許協力条約に基づく国際出願願書

紙面による写し(注意 電子データが原本となります)

III-1	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor) 米国のみ (US only)
III-1-2	右の指定国についての出願人である。	坂本 健
III-1-4ja	氏名(姓名)	SAKAMOTO Takeshi
III-1-4en	Name (LAST, First):	1038272
III-1-5ja	あて名	日本国 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 TDK株式会社内
III-1-5en	Address:	c/o TDK CORPORATION, 13-1, Nihonbashi 1-chome, Chuo-ku Tokyo 1038272 Japan
III-1-6	国籍(国名)	日本国 JP
III-1-7	住所(国名)	日本国 JP
III-2	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor) 米国のみ (US only)
III-2-2	右の指定国についての出願人である。	内田 信也
III-2-4ja	氏名(姓名)	UCHIDA Nobuya
III-2-4en	Name (LAST, First):	1038272
III-2-5ja	あて名	日本国 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 TDK株式会社内
III-2-5en	Address:	c/o TDK CORPORATION, 13-1, Nihonbashi 1-chome, Chuo-ku Tokyo 1038272 Japan
III-2-6	国籍(国名)	日本国 JP
III-2-7	住所(国名)	日本国 JP

特許協力条約に基づく国際出願願書

紙面による写し(注意 電子データが原本となります)

III-3	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor) 米国のみ (US only)
III-3-1		田中 美知
III-3-2	右の指定国についての出願人である。	TANAKA Yoshitomo
III-3-4ja	氏名(姓名)	1038272
III-3-4en	Name (LAST, First):	日本国
III-3-5ja	あて名	東京都中央区日本橋一丁目13番1号 TDK株式会社内
III-3-5en	Address:	c/o TDK CORPORATION, 13-1, Nihonbashi 1-chome, Chuo-ku Tokyo 1038272 Japan
III-3-6	国籍(国名)	日本国 JP
III-3-7	住所(国名)	日本国 JP
III-4	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor) 米国のみ (US only)
III-4-1		中山 靖之
III-4-2	右の指定国についての出願人である。	NAKAYAMA Yasuyuki
III-4-4ja	氏名(姓名)	1038272
III-4-4en	Name (LAST, First):	日本国
III-4-5ja	あて名	東京都中央区日本橋一丁目13番1号 TDK株式会社内
III-4-5en	Address:	c/o TDK CORPORATION, 13-1, Nihonbashi 1-chome, Chuo-ku Tokyo 1038272 Japan
III-4-6	国籍(国名)	日本国 JP
III-4-7	住所(国名)	日本国 JP
IV-1	代理人又は共通の代表者、通知のあて名 下記の者は国際機関において右記のことく出願人のために行動する。 氏名(姓名)	代理人 (agent) 三反崎 泰司
IV-1-1ja		MITAZAKI Taiji
IV-1-1en	Name (LAST, First):	1600022
IV-1-2ja	あて名	日本国
IV-1-2en	Address:	東京都新宿区新宿1丁目9番5号大台ビル2F 2F, Oodai Building, 9-5, Shinjuku 1-chome, Shinjuku-ku Tokyo 1600022 Japan
IV-1-3	電話番号	03-3225-0981
IV-1-4	ファクシミリ番号	03-3225-0980
IV-1-6	代理人登録番号	100109656

特許協力条約に基づく国際出願願書

紙面による写し(注意 電子データが原本となります)

IV-2	その他の代理人	筆頭代理人と同じあて名を有する代理人 (additional agent(s) with the same address as first named agent)	
IV-2-1ja	氏名	藤島 洋一郎(100098785)	
IV-2-1en	Name(s)	FUJISHIMA Youichiro(100098785)	
V	国の指定		
V-1	この願書を用いてされた国際出願は、規則4.9(a)に基づき、国際出願の時点で拘束される全てのPCT締約国を指定し、取得しうるあらゆる種類の保護を求め、及び該当する場合には広域と国内特許の両方を求める国際出願となる。		
VI-1	先の国内出願に基づく優先権主張		
VI-1-1	出願日	2004年 07月 16日 (16. 07. 2004)	
VI-1-2	出願番号	2004-210451	
VI-1-3	国名	日本国 JP	
VI-2	優先権証明書送付の請求	VI-1	
	上記の先の出願のうち、右記の番号のものについては、出願書類の認証原本を作成し国際事務局へ送付することを、受理官庁に対して請求している。		
VII-1	特定された国際調査機関(ISA)	日本国特許庁 (ISA/JP)	
VIII	申立て	申立て数	
VIII-1	発明者の特定に関する申立て	-	
VIII-2	出願し及び特許を与えられる国際出願日における出願人の資格に関する申立て	-	
VIII-3	先の出願の優先権を主張する国際出願日における出願人の資格に関する申立て	-	
VIII-4	発明者である旨の申立て(米国を指定国とする場合)	-	
VIII-5	不利にならない開示又は新規性喪失の例外に関する申立て	-	
IX	照合欄	用紙の枚数	添付された電子データ
IX-1	願書(申立てを含む)	5	✓
IX-2	明細書	12	✓
IX-3	請求の範囲	1	✓
IX-4	要約	1	✓
IX-5	図面	2	✓
IX-7	合計	21	
IX-8	添付書類	添付	添付された電子データ
IX-17	手数料計算用紙	-	✓
IX-19	PCT-SAFE 電子出願	-	-
IX-20	要約書とともに提示する図の番号	1	
	国際出願の使用言語名	日本語	

特許協力条約に基づく国際出願願書

紙面による写し(注意 電子データが原本となります)

X-1	出願人、代理人又は代表者の記名押印	/100109656/
X-1-1	氏名(姓名)	三反崎 泰司
X-1-2	署名者の氏名	
X-1-3	権限	
X-2	出願人、代理人又は代表者の記名押印	/100098785/
X-2-1	氏名(姓名)	藤島 洋一郎
X-2-2	署名者の氏名	
X-2-3	権限	

受理官庁記入欄

10-1	国際出願として提出された書類の実際の受理の日	
10-2	図面	
10-2-1	受理された	
10-2-2	不足図面がある	
10-3	国際出願として提出された書類を補完する書類又は図面であつてその後期間内に提出されたものの実際の受理の日(訂正日)	
10-4	特許協力条約第11条(2)に基づく必要な補完の期間内の受理の日	
10-5	出願人により特定された国際調査機関	ISA/JP
10-6	調査手数料未払いにつき、国際調査機関に調査用写しを送付していない	

国際事務局記入欄

11-1	記録原本の受理の日	
------	-----------	--